

**PCT**

**NOTIFICATION OF ELECTION**

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner  
US Department of Commerce  
United States Patent and Trademark  
Office, PCT  
2011 South Clark Place Room  
CP2/5C24  
Arlington, VA 22202  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing:

04 January 2001 (04.01.01)

International application No.:

PCT/JP00/04070

Applicant's or agent's file reference:

F9104

International filing date:

22 June 2000 (22.06.00)

Priority date:

25 June 1999 (25.06.99)

Applicant:

KUBO, Dairi et al

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International preliminary Examining Authority on:

23 October 2000 (23.10.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was

☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer:

J. Zahra

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2001 年 1 月 4 日 (04.01.2001)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/00544 A1

(51) 国際特許分類: C06D 5/00, C06B 31/02, 31/28, 45/02

(21) 国際出願番号: PCT/JP00/04070

(22) 国際出願日: 2000 年 6 月 22 日 (22.06.2000)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:  
特願平 11/180178 1999 年 6 月 25 日 (25.06.1999) JP  
特願平 11/298989  
1999 年 10 月 21 日 (21.10.1999) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日本化薬株式会社 (NIPPON KAYAKU KABUSHIKI-KAISHA) [JP/JP]; 〒102-8172 東京都千代田区富士見一丁目 11 番 2 号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 久保大理 (KUBO,

Dairi) [JP/JP]; 〒670-0893 兵庫県姫路市北平野 3-3-14 Hyogo (JP). 佐藤英史 (SATO, Eishi) [JP/JP]; 〒679-2123 兵庫県姫路市豊富町豊富 3903-39 Hyogo (JP). 児玉了意 (KODAMA, Ryoji) [JP/JP]; 〒679-2123 兵庫県姫路市豊富町豊富 3903-39 Hyogo (JP). 池田健治郎 (IKEDA, Kenjiro) [JP/JP]; 〒679-2122 兵庫県姫路市豊富町御蔭 746-3 Hyogo (JP).

(74) 代理人: 弁理士 梶 良之, 外 (KAJI, Yoshiyuki et al.); 〒532-0011 大阪府大阪市淀川区西中島 5 丁目 14 番 22 号 リクルート新大阪ビル Osaka (JP).

(81) 指定国 (国内): CZ, KR, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

添付公開書類:  
— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: GAS-GENERATING AGENT COMPOSITION

(54) 発明の名称: ガス発生剤組成物

(57) Abstract: A gas-generating agent composition comprising a fuel, an oxidizing agent and an additive, wherein the fuel comprises at least one high-energy nitrogen-containing organic compound exhibiting a high combustion speed and at least one low-energy nitrogen-containing organic compound exhibiting a low combustion speed, and the low-energy nitrogen-containing organic compound has a 50 % average particle diameter is 40  $\mu$ m or less.

(57) 要約:

燃料、酸化剤、及び添加剤よりなるガス発生剤組成物であって、その燃料が、少なくとも 1 種の高エネルギー性含窒素有機化合物と、少なくとも 1 種の低エネルギー性含窒素有機化合物よりなり、該低エネルギー性含窒素有機化合物の 50 % 平均粒径が 40  $\mu$ m 以下であるガス発生剤組成物。

WO 01/00544 A1

## 明 細 書

## ガス発生剤組成物

## 技術分野

本発明は、自動車の衝突事故等において乗員を保護するために用いられる自動車用エアバックやプリテンショナー等の乗員保護装置用ガス発生器に有用なガス発生剤組成物に関する。特に、ガス発生剤として好適な燃焼特性を実現するためのガス発生剤組成物に関する。

## 背景技術

乗員保護装置の一つであるエアバック装置は、自動車乗員の安全性向上のため、近年広く採用されている。その原理は、センサが衝突を検知することにより電気信号を発し、ガス発生器を作動させて、エアバックを展開し、衝突による乗員の衝撃をやわらげる働きをする。ガス発生器に要求される性能としては、有害物を含まないガスを発生すること、所望の時間内に必要十分なガスを発生させること等が挙げられる。

近年、ガス発生剤として、これまで用いられてきたアジ化金属化合物に代わり、含窒素有機化合物を燃料とし、これと無機酸化剤と組み合わせられたガス発生剤が提案されている。これらはガス発生量が多く、製造工程における危険性が低いという利点を有している。しかしながら、これら含窒素有機化合物を燃料とするガス発生剤の多くは、 $2500\text{ J/g}$ 以上の高い燃焼熱を有しており、発生ガスが高温高压である為に、ガス発生器内に多くの冷却材を必要とする。また、燃焼の際に副生するスラグは高温である為に流動性が高く、スラグがガス発生器外へ流出して、最悪の場合、乗員にやけどを負わせるおそれもある。いずれも多くの冷却材を用いる事で改善は認められるものの、ガス発生器の寸法が増大

し、ガス発生器の小型化、軽量化の流れに逆行することとなる。

そこで、スラグ形成剤を添加する事によって、高い温度域でも高粘性を示すスラグを形成させ、それを効率よく捕集する方法が提案されている。特に、特開平4-265292では、二酸化珪素に代表される低温スラグ形成剤と、燃焼温度近傍もしくはそれ以上の融点を有する固体を生成する高温スラグ形成剤の双方を添加し、捕集効率を高める方式が開示されている。しかしながら、スラグ形成剤自体はガス発生にほとんど寄与せず、ガス発生剤のガス発生量は、スラグ形成剤の添加量の増加にしたがって低下する。また、かかるスラグ形成剤の添加量の増加にしたがって、燃焼速度の低下を招く為にガス発生剤の燃焼調整が難しくなる。

一方、ガス発生剤の燃焼安定化及び燃焼時のガス発生挙動をコントロールするために、ガス発生器内に配置されるガス発生剤は一定の形状に成形されている。ガス発生剤の燃焼速度はガス発生剤組成物の構成成分や、ガス発生剤成形体の粒径によって変化する。従って、燃焼速度が遅いガス発生剤の場合には、ガス発生剤成形体の単位形状を小さくするか、またはその総表面積を大きくすることにより、短時間で急速なガス発生を可能にしている。逆に、燃焼速度が速いガス発生剤の場合には、ガス発生剤成形体の単位形状を大きくするか、またはその総表面積を小さくすることにより、所望のガス発生挙動を可能にしている。

ガス発生器における燃焼特性は、ほとんどの場合、用いられるガス発生剤の燃焼挙動により決定される。ガス発生器の燃焼特性は、例えば60リットルのタンク内でガス発生器を作動させて得られるタンク内圧力対時間の曲線で一般的に評価されている。近年、エアバック展開時に乗員に害を加えることのないように、いわゆるデパワー技術が注目されている。この目的のため、例えばガス発生器の60リットルタンクテスト

において、着火から10～20ミリ秒のガス発生速度を緩やかにし、20ミリ秒以降のガス発生速度を急にしたものが見られている。このようなガス発生器は、燃焼初期のガス発生速度が抑えられ、より理想的な乗員保護性能を発揮する。ガス発生剤の燃焼挙動は、ガス発生剤成形体の形状を変化させ、ガス発生量を計算する事で、ある程度燃焼挙動がコントロールできる。ガス発生剤の成形体形状とガス発生量の関係は発射薬の分野で古くから公知であり、例えば火薬ハンドブック p 279 (共立出版(株) 1987)等を参照する事で、ガス発生剤成形体の好適な形状は容易に決定できる。

また、異なる燃焼速度のガス発生剤組成物を層状に2種以上組み合わせ、多段階に燃焼挙動をコントロールする方法も可能である。このような方法でガス発生器の燃焼特性をコントロールするものとして、特開平6-48880がある。また、特開平6-107108、特開平6-107109には、ガス発生剤表面の一部に不活性な燃焼抑制剤の皮膜を有したガス発生剤が開示されている。これらはいずれも異なる燃焼速度のガス発生剤組成物を層状に組み合わせてガス発生剤成形体を形成している。このようなガス発生剤が着火するとまず、比較的燃焼しにくい層から燃焼し、60リットルタンクテストにおける初期のガス発生速度を抑えるものである。これらのガス発生剤は、異なる燃焼速度のガス発生剤組成物を層状に組み合わせるために、成形する際に従来より多くの工程を必要とした。また、少なくとも2種以上のガス発生剤組成物が必要となる為に、製造にかかるコストも多大であった。

また、特開平10-87390、特開平10-324588には、ガス発生剤形状を規定したガス発生剤成形体が開示されている。これらは、ガス発生剤が燃焼するにしたがって、ガス発生剤の燃焼表面積がなるべく小さくならないように、むしろ大きくなるようにガス発生剤の形状

を規定して所望の燃焼性能を得ようとしたものである。しかし、いずれの形状も、単孔もしくは多孔管状をなしており、ガス発生剤成形体中に空洞を有する為、ガス発生器に充填する際の充填密度は低くなる。また、ガス発生剤の形状が限定される為、いろいろな形状のガス発生器に対応して、ガス発生剤の形状を変化させる事が難しい。

本発明は、自動車用エアバックやプリテンショナー等の乗員保護装置用ガス発生器に有用なガス発生剤組成物であって、ガス発生剤の成形体を成形するにあたって複雑な製造工程を必要とせず、また、ガス発生剤成形体の形状に制限を受けることなく、より理想的な乗員保護性能を実現する燃焼特性を示すガス発生剤組成物を提供する事である。

#### 発明の開示

本発明者等は、上記課題を解決すべく鋭意検討した結果、ガス発生剤の組成を規定することにより、ガス発生剤の燃焼挙動が良好になることを見だし、本発明を完成するに至ったものである。

すなわち、本発明のガス発生剤組成物は、燃料、酸化剤、及び添加剤を含有し、前記燃料が、少なくとも1種の高エネルギー性含窒素有機化合物と少なくとも1種の低エネルギー性含窒素有機化合物とからなり、且つ、前記低エネルギー性含窒素有機化合物の50%平均粒径が $40\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする。

燃料の燃焼速度は、用いられる酸化剤の物性及びその燃焼速度に依存するところが多い。したがって、本発明においては、燃焼速度を議論する上で、燃料の燃焼速度に着目し、燃焼速度の速い含窒素化合物を高エネルギー性含窒素有機化合物、燃焼速度の遅い含窒素化合物を低エネルギー性含窒素有機化合物と定義付けた。

通常ガス発生剤組成物の燃料として2種以上の燃料を用いた場合、そ

の燃焼速度は、それぞれの燃料単体より構成されるガス発生剤組成物の燃焼速度の範囲を超えることは無く、ほぼその中間の燃焼速度で一定に近い値を示す。しかし、燃料の持つエネルギーに極端な差を持たせたガス発生剤組成物からなるガス発生剤の燃焼速度は一定なものではなく、ガス発生器において、着火からある程度の間、高エネルギー性燃料の燃焼を低エネルギー性燃料が阻害する形で初期の燃焼速度が遅くなる。そして、ガス発生器内の内部圧力が十分高くなり、ガス発生剤の燃焼速度が増加する。

本発明のように、低エネルギー性含窒素有機化合物の50%平均粒径が40  $\mu\text{m}$ 以下、さらに好ましくは20  $\mu\text{m}$ 以下であると、前記低エネルギー性燃料による高エネルギー性燃料の燃焼阻害効果が程良く得られる。

ここで、個数基準50%平均粒径とは、個数基準で粒度分布を表す方法であり、全粒子の個数を100としたとき、小さい方から積算して50個に達したときの粒度を個数基準の50%平均粒径という。

上記のような本発明のガス発生剤組成物のみからなるガス発生剤は、60リットルタンクテストにおいて、燃焼初期の燃焼速度が遅く、その後燃焼速度が速くなるといった燃焼挙動を示す。従って、前記本発明のガス発生剤組成物のみからなるガス発生剤の燃焼速度は略一定というわけでは無く変化する。従来、一種類のガス発生剤組成物のみからなるガス発生剤の燃焼速度は略一定であったので、この点において、本発明のガス発生剤組成物のみからなるガス発生剤は、従来のガス発生剤と根本的に異なる。

従って、エアバッグ等の乗員安全装置用ガス発生器に適したガス発生剤を得るために、異なる燃焼速度を示す2種以上のガス発生剤組成物を層状に組み合わせてガス発生剤成形体を形成したり、ガス発生剤成形体

の形状を規定したりと、特に行わなくても、所望の燃焼挙動を得ることができる。

また、従来のガス発生剤組成物は、ガス発生器が実際に作動する圧力の範囲において、ほぼ一定の燃焼速度を示していると近似できるガス発生剤組成物が選ばれていた。これは、燃焼速度の圧力に依存する割合が大きいガス発生剤組成物であると、周囲の温度変化や、ガス発生剤の粉化等によるガス発生器内の圧力変化によって著しく燃焼速度が変化してしまい、エアバッグ等の乗員保護装置用ガス発生器のガス発生剤組成物としては好ましくないからである。

燃焼速度の圧力依存性は、火薬類の燃焼速度に関する下記一般式の圧力指数によって得られる。ガス発生剤形状による燃焼挙動は、下記ガス発生速度を一次的に近似することで求められ、ガス発生器の燃焼性能がほぼ推測できる。

$$V = a P^n \quad (\text{V i e i l l e 式})$$

V : 燃焼速度、a : 組成や温度に依存する指数

P : 圧力、n : 圧力指数

上記一般式において、比較的圧力指数が低く、圧力による燃焼速度の変化が少ないものが燃焼速度の圧力依存性が小さく、エアバッグ等の乗員保護装置用ガス発生器のガス発生剤組成物として好ましい。

本発明のガス発生剤組成物は、従来のガス発生剤組成物とほぼ同程度の圧力指数を示す。

#### 図面の簡単な説明

第1図は、本発明の各実施例で使用したエアバッグ用ガス発生器1の概略図である。

第2図は、60リットルタンクテストの結果を示すグラフである。



第3図は、60リットルタンクテストの結果を示す表である。

発明を実施するための最良の形態

本発明のガス発生剤組成物は、燃料、酸化剤、及び添加剤を含有する。前記燃料は、少なくとも1種の燃焼速度の速い含窒素有機化合物と少なくとも1種の燃焼速度の遅い含窒素有機化合物よりなる。

すなわち、本発明のガス発生剤組成物における燃料は、少なくとも1種の高エネルギー性含窒素有機化合物と、少なくとも1種の低エネルギー性含窒素有機化合物よりなる。更に、低エネルギー性含窒素有機化合物の50%平均粒径が $40\mu\text{m}$ 以下、さらに好ましくは $20\mu\text{m}$ 以下である。

本発明のガス発生剤組成物からなるガス発生剤を用いたガス発生器は、60リットルタンクテストにより得られる燃焼曲線において、着火から20ms程度までの燃焼速度は遅く、20ms以後の燃焼速度は速くなる。また、本発明のガス発生剤組成物は、従来のガス発生剤組成物とほぼ同程度の圧力指数を示す。従って、本発明のガス発生剤組成物をガス発生器に用いることにより理想的な燃焼特性を実現することができる。

さらに詳しく説明する。

本発明において使用される高エネルギー性含窒素有機化合物とは、生成エンタルピーが高いものであり、比較的容易に燃焼し、速い燃焼速度を示すものである。高エネルギー性含窒素有機化合物としては、生成エンタルピーが $-200\text{kJ/mol}$ （標準状態）以上のものが用いることができ、好ましくは $-100\text{kJ/mol}$ 以上である。具体的には、アミノテトラゾール、ニトログアニジン、トリアミノグアニジンナイトレートよりな群から選ばれる少なくとも1種が挙げられる。

また、本発明において使用される低エネルギー性含窒素有機化合物とは、生成エンタルピーが低いものであり、着火しにくく、遅い燃焼速度を示すものである。低エネルギー性含窒素有機化合物としては、生成エンタルピーが $-200\text{ kJ/mol}$ （標準状態）以下のものが用いることができ、好ましくは $-300\text{ kJ/mol}$ 以下であり、その具体例としては、硝酸グアニジン、オキサミド等が挙げられる。

本発明において高エネルギー性含窒素有機化合物と低エネルギー性含窒素有機化合物の組み合わせに制限はないが、その生成エンタルピーの差が $200\text{ kJ/mol}$ 以上であることが好ましい。

ここで、高エネルギー性含窒素有機化合物として、アミノテトラゾールが高い窒素含有率であり、取り扱い上の安全性が比較的高い等の理由から好ましい。また、ニトログアニジンも発生ガスモル数が多いことから、高エネルギー性含窒素有機化合物として好適である。

また、低エネルギー性含窒素有機化合物としては、通常、単体で酸化剤と組み合わせた場合燃焼速度が遅く、ガス発生器用には用いられることの少ない、硝酸グアニジンが、比較的入手しやすく、価格が安い等の理由から好ましい。

高エネルギー性含窒素有機化合物としてアミノテトラゾールを、低エネルギー性含窒素有機化合物として硝酸グアニジンを用いた場合の生成エンタルピー差は $598\text{ kJ/mol}$ となり、高エネルギー性含窒素有機化合物としてニトログアニジンを、低エネルギー性含窒素有機化合物として硝酸グアニジンを用いた場合の生成エンタルピー差は $296\text{ kJ/mol}$ となる。

高エネルギー性含窒素有機化合物と低エネルギー性含窒素有機化合物との混合比は重量比にして $10:1\sim1:10$ 、好ましくは $5:1\sim1:5$ である。また、燃料としてガス発生剤組成物全体に対する含有量は

15～85重量%である。

更に、高エネルギー性含窒素有機化合物としてアミノテトラゾールを、低エネルギー性含窒素有機化合物として硝酸グアニジンを用いる場合の混合比は、重量比にして3対1から1対3の範囲であることが好ましい。また、高エネルギー性含窒素有機化合物としてニトログアニジンを、低エネルギー性含窒素有機化合物として硝酸グアニジンを用いる場合の混合比は、重量比にして5対1から1対1の範囲であることが好ましい。硝酸グアニジンの量が多すぎると著しい燃焼速度の低下を生じ、また、少なすぎると好適な燃焼性能が得られない。

低エネルギー性含窒素有機化合物の50%平均粒径は40 $\mu$ m以下、さらに好ましくは20 $\mu$ m以下がよい。実際には、50%平均粒径が小さくなるにつれて、ガス発生剤組成物の着火から20ms程度までの燃焼速度が遅くなる。低エネルギー性含窒素有機化合物、特に硝酸グアニジンは粉碎が困難であり40 $\mu$ m以下にまで粉碎してガス発生剤として用いられた例はこれまでにないが、50%平均粒径が40 $\mu$ m以上である場合には、低エネルギー性燃料の効果が認められず、燃焼初期の燃焼速度の低下が十分でない。

さらには、ガス発生剤組成物のプレス成形において、圧壊強度が十分に得られない。また、50%平均粒径が5 $\mu$ m以下である場合には、粉碎に多大なコストを必要とするため好ましくないが、本発明の効果は得ることができる。なお、本発明のガス発生剤組成物のプレス成形においては、40 $\mu$ m以下に粉碎された硝酸グアニジンが固着剤としての機能を示すため、圧壊強度の強い（硬度の高い）ガス発生剤組成物の錠剤が得られる。

本発明において使用することができる酸化剤としては、硝酸塩、ハロゲン酸塩やクロム酸塩などの酸素酸塩、酸化物や過酸化物など、上述し

た高エネルギー性含窒素有機化合物及び低エネルギー性含窒素有機化合物からなる燃料を酸化することができるものであれば採用することができる。好適にはアルカリ金属又はアルカリ土類金属の硝酸塩、過塩素酸塩、塩素酸塩や、塩基性硝酸銅よりなる群から選ばれる少なくとも一種が好ましい。また、相安定化硝酸アンモニウム又は過塩素酸アンモニウムとアルカリ金属又はアルカリ土類金属の硝酸塩、過塩素酸塩、塩素酸塩又は塩基性硝酸銅との混合物よりなる群から選ばれる少なくとも一種も好ましい。燃焼により高粘性のスラグ形成金属成分となる硝酸ストロンチウムがより好ましい。

酸化剤は、ガス発生剤組成物が化学量論的に完全燃焼される当量付近で含有量を決定すればよく、この当量を大きくはずれたガス発生剤組成物においては、燃焼ガス中における著しいCO、あるいはNO<sub>x</sub>ガスの増加をもたらすが、ガス発生剤組成物全体に対して、30～70重量%の範囲で決定すればよい。30重量%未満では酸素供給量が不足して不完全燃焼を生じ、有害なCOガスを生じるおそれがある。一方、70重量%を越えると、逆に燃料の含有量不足が生じるおそれがあり、エアバック展開時に必要なガスが供給されないおそれがある。

本発明において酸化剤として好適な硝酸ストロンチウムはそれ自体単独で使用するか、或いはアルカリ金属の硝酸塩、過塩素酸アンモニウム、又は塩基性硝酸銅を加え、混合酸化剤として使用することも可能である。具体例としては、硝酸ストロンチウムと硝酸カリウム、硝酸ストロンチウムと過塩素酸アンモニウム、或いは硝酸ストロンチウムと塩基性硝酸銅の組み合わせが挙げられる。

本発明のガス発生剤組成物における混合酸化剤は、アルカリ金属の硝酸塩、及び塩基性硝酸銅を少量添加する場合には、燃焼速度を上昇させ、良好な燃焼ガスを与えることができる。また、過塩素酸アンモニウム

を少量添加する場合には、ガス発生剤の発生ガスモル数が増加するため、特に、プリテンショナーに用いるガス発生剤組成物として有用である。

特に硝酸カリウムを加える場合においては、ガス発生剤組成物全体に対して10重量%以下という低含有量でその効果を発揮する。10重量%を超えて硝酸カリウムを用いた場合、ガス発生剤組成物の燃焼によって発生する流出スラグが増大する。これらカリウム由来のスラグは、ガス発生器内のフィルターにて濾過が困難であり、バッグ損傷、或いは乗員に火傷を負わせるおそれがある。また、硝酸カリウムを多く用いた場合、本発明のガス発生剤組成物の特徴である初期の燃焼速度を押えることが困難となり、乗員加害性が増加するおそれがある。

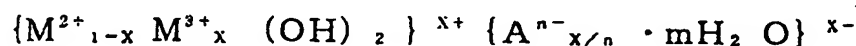
塩基性硝酸銅を加える場合の含有量は、ガス発生剤組成物全体に対して30重量%以下であることが好ましい。塩基性硝酸銅を使用する場合には、硝酸カリウムを使用した場合とは異なり、スラグは容易に濾過することが可能である。従って、30重量%までは許容できるが、これを超える場合には、ガス発生剤組成物の燃焼速度が低下し、所望の燃焼速度が得られないおそれがある。

添加剤としては、スラグ形成剤、バインダー等が挙げられる。本発明のガス発生剤組成物においては、スラグ形成剤として窒化珪素又は炭化珪素を用いることが好ましい。窒化珪素及び炭化珪素は、ファインセラミックスと呼ばれているものであり、熱的にも安定で、高強度の耐熱材料として使用されているものであるが、高温の酸化性雰囲気下では分解する性質がある。この性質を利用して、スラグ形成とガス発生 の両方の作用を行う。窒化珪素又は炭化珪素の含有量は、0.5～10重量%の範囲が好ましく、0.5重量%以下では、上記したスラグ捕集において十分な効果が期待できなくなり、また10重量%を越えると燃料や酸化

剤の含有量が相対的に減少するので、ガス発生量不足を生じるおそれがある。

特に、窒化珪素又は炭化珪素の微粒子を前記燃料若しくは酸化剤粉碎時に添加することで、固結防止剤としての効果も認められる。また、窒化珪素又は炭化珪素は、低エネルギーの燃料を含有する本発明のガス発生剤組成物の燃焼速度を低下させることなくスラグ形成能力を発揮できることを特徴とする。スラグ形成剤として  $\text{SiO}_2$  を必要量添加した場合には著しい燃焼速度の低下を招くために、本発明においては好ましくない。

さらに、バインダー兼スラグ形成剤として、次の一般式で示されるヒドロタルサイト類を用いることが好ましい。



ここで、

$M^{2+}$  :  $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Mn}^{2+}$ 、 $\text{Fe}^{2+}$ 、 $\text{Co}^{2+}$ 、 $\text{Ni}^{2+}$ 、 $\text{Cu}^{2+}$ 、 $\text{Zn}^{2+}$ 等の2価金属

$M^{3+}$  :  $\text{Al}^{3+}$ 、 $\text{Fe}^{3+}$ 、 $\text{Cr}^{3+}$ 、 $\text{Co}^{3+}$ 、 $\text{In}$ 等の3価金属

$A^{n-}$  :  $\text{OH}^-$ 、 $\text{F}^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{CO}_3^{2-}$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$

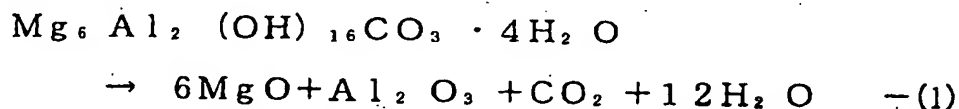
$\text{Fe}(\text{CN})_6^{3-}$ 、 $\text{CH}_3\text{COO}^-$ 、蔞酸イオン、サリチル酸イオン等のn価アニオン

$X$  :  $0 < X \leq 0.33$

具体的には、前記ヒドロタルサイト類が、化学式 $\text{Mg}_6\text{Al}_2(\text{OH})_{16}\text{CO}_3 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ で表される合成ヒドロタルサイト又は化学式 $\text{Mg}_6\text{Fe}_2(\text{OH})_{16}\text{CO}_3 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ で表されるピロウライトが例示できる。このヒドロタルサイト類は、結晶水を有する多孔質の物質であり、含窒素有機化合物系のガス発生剤のバインダーとして極めて有効である。特にテトラゾール類を主成分とするガス発生剤組成物に対しては、

通常のアジド系ガス発生剤の錠剤硬度よりもはるかに高い硬度を得ることが可能である。

これはヒドロタルサイト類が共通して水分を吸着しやすい性質を有しており、この性質がガス発生剤の各成分を強固に結合させる作用をなすものと考えられる。また、このバインダーを用いた錠剤は、高温、低温の繰り返しによる熱衝撃に対しても、ガス発生剤の特性、燃焼性に変化が無く、したがって実際に車両に搭載した際の経年劣化が少ないものとなる。さらにヒドロタルサイト類は、ガス発生剤の燃焼の際に、例えば合成ヒドロタルサイトの場合は次の反応式(1)に示すように反応すると考えられる。



このため、有害ガスを発生せず、また、反応自体は吸熱反応であるので、ガス発生剤の発熱量を低減させる効果もある。また、合成ヒドロタルサイトの分解生成物自体も、次式(2)に示す酸塩基反応であるスラグ反応によって容易に濾過可能なスピネルを形成する。



バインダーの含有量は2～10重量%の範囲が好ましく、2重量%未満である場合には、バインダーとしての機能が達成しがたく、10重量%を超えると燃料や酸化剤の含有量が相対的に減少するので、ガス発生量の不足を生じるおそれがある。また、ヒドロタルサイト類をガス発生剤組成物に添加することで、ガス発生剤組成物の感度を低下させ、その結果として、製造時の安全性が向上するという効果も認められる。

また、バインダーとしてセルロース系バインダー又は天然高分子を用いることができる。このバインダーはガス発生剤組成物を押し出し成形する場合に好適である。前記セルロース系バインダーの具体例として、

カルボキシメチルセルロース、メチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロースよりなる群から選ばれる少なくとも1種が挙げられる。天然高分子のバインダーの具体例としてグアーガム又はトラガカントゴムよりなる群から選ばれる少なくとも1種が挙げられる。これらセルロース系バインダー又は天然高分子の含有量は2～10重量%が好ましい。

セルロース系バインダー以外のものとしては、ポリアクリル酸、ポリアクリル酸ソーダ、ポリアクリルアミド、およびこれらの2種又は3種の共重合化合物よりなる群から選ばれる少なくとも1種が挙げられる。これらの添加量は0.5～10重量%が好ましく、その効果としてガス発生剤組成物の耐熱性の向上が認められる。

さらに、押し出し成形を行う場合には、シラン化合物を添加することで、特に成形性が向上する。使用しうるシラン化合物の具体例としては、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス ( $\beta$ -メトキシエトキシ) シラン、 $\beta$ -(3,4-エポキシシクロヘキシル) エチルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、 $\gamma$ -メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、 $\gamma$ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、 $\gamma$ -メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、N- $\beta$ -(アミノエチル)- $\gamma$ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N- $\beta$ -(アミノエチル)- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- $\beta$ -(アミノエチル)- $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N-フェニル- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン、テトラメトキシシラ



ン、メチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、ジフェニルジメトキシシラン、テトラエトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、ジフェニルジエトキシシラン、ヘキシルトリメトキシシラン、ヘキシルトリエトキシシラン、デシルトリメトキシシラン、ヘキサメチルジシラザン等が挙げられる。これらシラン化合物の添加量は0.5～10重量%が好ましい。

次に、本発明のガス発生剤組成物における各成分の好ましい組み合わせについて説明する。本発明のガス発生剤組成物において、燃料に5-アミノテトラゾール及び硝酸グアニジン、酸化剤に硝酸ストロンチウム、スラグ形成剤に窒化珪素、バインダーに合成ヒドロタルサイトを用いた組み合わせが好ましい。これら含有率については、5-アミノテトラゾール10～30重量%、硝酸グアニジン5～30重量%、硝酸ストロンチウム30～70重量%、窒化珪素0.5～10重量%、合成ヒドロタルサイト2～10重量%が好ましく、更に燃焼速度を上昇させるために10重量%以下の硝酸カリウム又は30重量%以下の塩基性硝酸銅を含有させるのがよい。硝酸グアニジンは低エネルギーであるがゆえに、含有量に応じて、燃焼速度が低下する傾向がある。また、硝酸グアニジンは粒子が硬いために粉碎が困難であり、ガス発生剤の製造における一般的な粉碎手段として用いられるピンミルやボールミルでは、50%平均粒径が50 $\mu$ m以上のものは容易に得られるものの、40 $\mu$ m以下、特に20 $\mu$ m以下までに粉碎するのは極めて困難であり、ジェットミル等の特殊な粉碎機を用いる必要がある。また、スラグ形成剤は窒化珪素が好ましい。窒化珪素を添加することで、燃焼速度を低下させることなく、良好なスラグ捕集性を実現する。バインダーとしては合成ヒドロタルサイトが好ましく、ガス発生剤組成物の硬度の向上だけでなく、発熱

量の低下、良好なスラグ捕集能力も認められる。

また、本発明のガス発生剤組成物において、燃料にニトログアニジン及び硝酸グアニジン、酸化剤に硝酸ストロンチウム、スラグ形成剤に窒化珪素、バインダーにセルロース系バインダーを用いた組み合わせも好ましい。これらの含有率については、ニトログアニジン20～55重量%、硝酸グアニジン5～30重量%、硝酸ストロンチウム30～60重量%、窒化珪素0.5～10重量%、セルロース系バインダー又は合成ヒドロタルサイト2～10重量%が好ましく、更に燃烧速度を上昇させるために10重量%以下の硝酸カリウム又は30重量%以下の塩基性硝酸銅を含有させるのがよい。ニトログアニジン及び硝酸グアニジンを燃料に含む本発明のガス発生剤組成物は、特に、押し出し成形によってガス発生剤が成形される形態が好ましく、このときバインダーとしてはセルロース系バインダーが特に有利である。バインダーの種類は、水を溶媒として適度な粘性を示すものであれば、特に限定されるものではない。ただし、酸化剤に相安定化硝酸アンモニウムを含有する場合には、アニオン性のバインダーを用いると、イオン反応を起こし、耐熱性が著しく低下するために好ましくない。この場合、好ましくはノニオン性のバインダーである。スラグ形成剤としては窒化珪素が好ましい。窒化珪素を添加することで、燃烧速度を低下させることなく、良好なスラグ捕集性を実現する。

また、本発明のガス発生剤組成物において、燃料に5-アミノテトラゾール及び硝酸グアニジン、酸化剤に硝酸ストロンチウム及び過塩素酸アンモニウム、バインダーとしてポリアクリルアミド、押し出し成形時の成形性の向上を目的として、シラン化合物を用いた組み合わせが好ましい。これらの含有率については、5-アミノテトラゾール10～30重量%、硝酸グアニジン5～30重量%、硝酸ストロンチウム10～5

0重量%、過塩素酸アンモニウム10～50重量%、ポリアクリルアミド0.5～10重量%、シラン化合物0.5～10重量%が好ましい。押し出し成形時には溶媒として水を添加するのが好ましく、この時、用いられるシラン化合物としては、水に溶解する性質を持つものがよい。

本発明のガス発生剤組成物の形状は、粉状、顆粒状、ペレット状のいずれでもよく、また混練薬剤をプレス成形、もしくは、押し出し成形してもよい。成形しうる形状としては、例えば錠剤状、単孔円筒状、多孔円筒状等が挙げられる。

次に本発明のガス発生剤組成物の製造法について説明する。本発明のガス発生剤組成物は、プレス成形、押し出し成形の何れの方法にても実施可能である。なお、成形後に熱処理を行うことで、ガス発生剤組成物を十分に乾燥させ、水分に起因する着火遅れの防止や耐環境性の向上を果たすことができる。

プレス成形を行う場合、まず、燃料成分、及び酸化剤に固結防止剤を添加し、V型混合機で混合した後に粉砕を行う。粉砕済み燃料成分、粉砕済み酸化剤、成形用助剤を所定量計り取り、V型混合機で均一に混合した後、プレス成形機に投入した後、熱処理を行う。得られたガス発生剤成形体はガス発生剤組成物として用いられる。

押し出し成形を行う場合、同様に燃料成分、酸化剤を粉砕し、各成分をスパイラルミキサに計り取り、外割りで8～25重量%の水を加え、十分に混練し、粘性を有する湿薬にする。その後、真空混練押出成形機を用いて、所望の形状に押し出し成形し、適宜切断した後、熱処理を行う。このようにして得られた押し出し成形体をガス発生剤組成物として用いられる。

実施例により、本発明をより詳細に説明する。

## 〔実施例 1〕

燃料として 5-アミノテトラゾール：24.7 重量部（50% 粒径、 $15\ \mu\text{m}$ ）、および硝酸グアニジン：11.9 重量部（50% 粒径、 $30\ \mu\text{m}$ ）、酸化剤として硝酸ストロンチウム：53.4 重量部（50% 粒径、 $13\ \mu\text{m}$ ）、スラグ形成剤として窒化珪素：5.0 重量部（50% 粒径、 $5\ \mu\text{m}$ ）およびバインダーとして合成ヒドロタルサイト：5.0 重量部（50% 粒径、 $10\ \mu\text{m}$ ）を V 型混合機により乾式混合した。次に、混合粉末全量に対して 15 重量部の水を噴霧しながら混合し、その後湿式造粒を行い、粒径  $1\ \text{mm}$  以下の顆粒状にした。この顆粒を加熱乾燥した後、回転式打錠機でプレス成形して、直径  $5\ \text{mm}$ 、高さ  $1.5\ \text{mm}$ 、の本発明のガス発生剤組成物の錠剤を得た。

この錠剤を第 1 図で示されるガス発生器 1 に  $40\ \text{g}$  充填した。なお、ガス発生器 1 は、点火装置 2 と伝火薬 3 が配置された中央の点火室 7 と、その周囲のガス発生剤 4 が充填された燃焼室 8 と、さらにその周囲の金網 5 が配置された冷却フィルタ室 9 とから構成され、燃焼ガスは、冷却フィルタ室 9 を経て、ハウジングのガス噴出口 6 から外部へ噴出するようになっている。このガス発生器 1 を、内容積  $60\ \text{リットル}$  の容器に取り付けた後、ガス発生器 1 を作動させ、容器内にガスを放出させて、容器内圧力の時間変化の測定を行った。この  $60\ \text{リットル}$  タンクテストの結果を第 3 図の表 1 に示す。

## 〔実施例 2〕

燃料として 5-アミノテトラゾール：19.7 重量部（50% 粒径、 $15\ \mu\text{m}$ ）、および硝酸グアニジン：19.7 重量部（50% 粒径、 $10\ \mu\text{m}$ ）、酸化剤として硝酸ストロンチウム：50.6 重量部（50% 粒径、 $13\ \mu\text{m}$ ）、スラグ形成剤として窒化珪素：5.0 重量部（50% 粒径、 $5\ \mu\text{m}$ ）およびバインダーとして合成ヒドロタルサイト：5.

0重量部（50%粒径、10 $\mu$ m）をV型混合機により乾式混合した。次に、混合粉末全量に対して15重量%の水を噴霧しながら混合し、その後湿式造粒を行い、粒径1mm以下の顆粒状にした。この顆粒を加熱乾燥した後、回転式打錠機でプレス成形して、直径5mm、高さ1.5mm、の本発明のガス発生剤組成物の錠剤を得た。

この錠剤を第1図で示されるガス発生器1に40g充填し、実施例1と同様の試験を行った。得られた結果を第2図のグラフ及び第3図の表1に示す。第2図のグラフにおいてa線が本実施例の結果を示している。

#### 〔実施例3〕

燃料として5-アミノテトラゾール：19.4重量部（50%粒径、15 $\mu$ m）、および硝酸グアニジン：19.4重量部（50%粒径、10 $\mu$ m）、酸化剤として硝酸ストロンチウム：44.2重量部（50%粒径、13 $\mu$ m）、および硝酸カリウム：7.0重量部（50%粒径、35 $\mu$ m）スラグ形成剤として窒化珪素：5.0重量部（50%粒径、5 $\mu$ m）およびバインダーとして合成ヒドロタルサイト：5.0重量部（50%粒径、10 $\mu$ m）をV型混合機により乾式混合した。次に、混合粉末全量に対して15重量%の水を噴霧しながら混合し、その後湿式造粒を行い、粒径1mm以下の顆粒状にした。この顆粒を加熱乾燥した後、回転式打錠機でプレス成形して、直径6mm、高さ1.5mm、の本発明のガス発生剤組成物の錠剤を得た。

この錠剤を第1図で示されるガス発生器1に40g充填し、実施例1と同様の試験を行った。得られた結果を第3図の表1に示す。

#### 〔実施例4〕

燃料としてニトログアニジン：41.5重量部（50%粒径、20 $\mu$ m）、および硝酸グアニジン：8.2重量部（50%粒径、10 $\mu$ m）

、酸化剤として硝酸ストロンチウム：35.3重量部（50%粒径、 $13\mu\text{m}$ ）、および硝酸カリウム：5.0重量部（50%粒径、 $35\mu\text{m}$ ）、スラグ形成剤として窒化珪素：5.0重量部（50%粒径、 $5\mu\text{m}$ ）およびバインダーとして合成ヒドロタルサイト：5.0重量部（50%粒径、 $10\mu\text{m}$ ）をV型混合機により乾式混合した。次に、混合粉末全量に対して15重量%の水を噴霧しながら混合し、その後湿式造粒を行い、粒径1mm以下の顆粒状にした。この顆粒を加熱乾燥した後、回転式打錠機でプレス成形して、直径5mm、高さ2.0mm、の本発明のガス発生剤組成物の錠剤を得た。この成形体を第1図で示されるガス発生器1に35g充填し、実施例1と同様の試験を行った。得られた結果を第3図の表1に示す。

〔実施例5〕

燃料としてニトログアニジン：42.1重量部（50%粒径、 $20\mu\text{m}$ ）、および硝酸グアニジン：8.7重量部（50%粒径、 $30\mu\text{m}$ ）、酸化剤として硝酸ストロンチウム：39.2重量部（50%粒径、 $13\mu\text{m}$ ）、スラグ形成剤として窒化珪素：5.0重量部（50%粒径、 $5\mu\text{m}$ ）およびバインダーとしてメチルセルロース：5.0重量部をV型混合機により乾式混合した。次に、混合粉末全量に対して15重量%の水を噴霧しながら混合し、その後、混練機により真空脱気しながら混練した。得られた粘土状ガス発生剤組成物をスクリー式押し出し成型機にて成形後これを加熱乾燥し、外形が直径3mm、高さ2mmの円柱状ガス発生剤組成物成形体を得た。

この成形体を第1図で示されるガス発生器1に35g充填し、実施例1と同様の試験を行った。得られた結果を第2図のグラフ及び第3図の表1に示す。第2図のグラフにおいて、b線が本実施例の結果を示している。

## 〔実施例6〕

燃料としてニトログアニジン：34.7重量部（50%粒径、 $20\mu\text{m}$ ）、および硝酸グアニジン：9.5重量部（50%粒径 $10\mu\text{m}$ ）、酸化剤として硝酸ストロンチウム：36.8重量部（50%粒径、 $13\mu\text{m}$ ）、および塩基性硝酸銅：10.5重量部（50%粒径、 $11\mu\text{m}$ ）、スラグ形成剤として窒化珪素：3.5重量部（50%粒径、 $5\mu\text{m}$ ）およびバインダーとしてメチルセルロース：5.0重量部をV型混合機により乾式混合した。次に、混合粉末全量に対して15重量%の水を噴霧しながら混合し、その後、混練機により真空脱気しながら混練した。得られた粘土状ガス発生剤組成物をスクリー式押し出し成型機にて成形後これを加熱乾燥し、外形が直径4mm、高さ2mmの円柱状ガス発生剤組成物成形体を得た。

この成形体を第1図で示されるガス発生器1に35g充填し、実施例1と同様の試験を行った。得られた結果を第3図の表1に示す。

## 〔比較例1〕

燃料として5-アミノテトラゾール：30.9重量部（50%粒径、 $15\mu\text{m}$ ）、酸化剤として硝酸ストロンチウム：57.9重量部（50%粒径、 $13\mu\text{m}$ ）、スラグ形成剤として窒化珪素：5.0重量部（50%粒径、 $5\mu\text{m}$ ）およびバインダーとして合成ヒドロタルサイト：5.0重量部（50%粒径、 $10\mu\text{m}$ ）をV型混合機により乾式混合した。次に、混合粉末全量に対して15重量部の水を噴霧しながら混合し、その後湿式造粒を行い、粒径1mm以下の顆粒状にした。この顆粒を加熱乾燥した後、回転式打錠機でプレス成形して、直径5mm、高さ2.0mm、のガス発生剤錠剤を得た。

この錠剤を第1図で示されるガス発生器1に40g充填し、実施例1と同様の試験を行った。得られた結果を第2図のグラフ及び第3図の表

1に示す。第2図のグラフにおいて、線cが本比較例の結果を示している。

〔比較例2〕

燃料として硝酸グアニジン：50.6重量部（50%粒径、15 $\mu$ m）、酸化剤として硝酸ストロンチウム：39.4重量部（50%粒径、13 $\mu$ m）、スラグ形成剤として窒化珪素：5.0重量部（50%粒径、5 $\mu$ m）およびバインダーとして合成ヒドロタルサイト：5.0重量部（50%粒径、10 $\mu$ m）をV型混合機により乾式混合した。次に、混合粉末全量に対して15重量部の水を噴霧しながら混合し、その後湿式造粒を行い、粒径1mm以下の顆粒状にした。この顆粒を加熱乾燥した後、回転式打錠機でプレス成形して、直径5mm、高さ1.5mm、のガス発生剤錠剤を得た。

この錠剤を第1図で示されるガス発生器1に40g充填し、実施例1と同様の試験を行った。得られた結果を第2図のグラフ及び第3図の表1に示す。第2図のグラフにおいて、線dが本比較例の結果を示している。

〔比較例3〕

燃料として5-アミノテトラゾール：24.7重量部（50%粒径、15 $\mu$ m）、および硝酸グアニジン11.9重量部（50%粒径50 $\mu$ m）、酸化剤として硝酸ストロンチウム：53.4重量部（50%粒径、13 $\mu$ m）、スラグ形成剤として窒化珪素：5.0重量部（50%粒径、5 $\mu$ m）およびバインダーとして合成ヒドロタルサイト：5.0重量部（50%粒径、10 $\mu$ m）をV型混合機により乾式混合した。次に、混合粉末全量に対して15重量部の水を噴霧しながら混合し、その後湿式造粒を行い、粒径1mm以下の顆粒状にした。この顆粒を加熱乾燥した後、回転式打錠機でプレス成形して、直径5mm、高さ1.5mm



m、のガス発生剤錠剤を得た。

この錠剤を第1図で示されるガス発生器1に40g充填し、実施例1と同様の試験を行った。得られた結果を図2のグラフ及び第3図の表1に示す。第2図のグラフにおいて、線eが本比較例の結果を示している。

実施例1～6において、本発明のガス発生剤組成物の成形体は、第2図及び第3図の結果から明らかなように、60リットルタンクテストにおいて、着火から10～20msでのガス発生速度が抑えられ、20ms以降のガス発生速度がより急に立ち上がっており、また、40ms以降では従来と同等の圧力となり、好適なガス発生器の燃焼性能が得られていることがわかる。

ここで、比較例1によると、硝酸グアニジンを添加していない、すなわち燃料が1種の高エネルギー性含窒素有機化合物よりなる場合には、第2図及び第3図より20msまでの60リットルタンク圧力が、大きく、インフレータとしては、より加害性の高いものとなる。また、比較例2によると、低エネルギー性燃料である硝酸グアニジンのみよりなるガス発生剤組成物の場合、第2図より、極端な燃焼速度の低下が認められ、ガス発生剤として不適なものとなる。また、比較例3によると、硝酸グアニジンの50%平均粒径が40 $\mu$ mを超える場合には、比較例1とほぼ大差のない60リットルタンク圧力となり、本発明のような効果が認められない。

以上の説明から明らかなように、本発明のガス発生剤組成物は、燃料が、燃焼速度の速い高エネルギー性含窒素有機化合物と、燃焼速度の遅い低エネルギー性含窒素有機化合物よりなる少なくとも2種以上の含窒素有機化合物からなり、低エネルギー性含窒素有機化合物の50%平均粒径が40 $\mu$ m以下とすることで、ガス発生器として好適な燃焼挙動を

示すガス発生剤組成物を提供する。従って、本発明のガス発生剤組成物からなるガス発生剤を用いると、乗員加害性の少ない燃焼性能を有するガス発生器を、簡単かつ低コストで実現することができる。

#### 産業上の利用可能性

本発明は、自動車用エアバックまたはプリテンショナー等の乗員保護装置用ガス発生器のガス発生剤に有用なガス発生剤組成物にあつて、複雑な製造工程を必要とせず、また、ガス発生剤形状に制限を受けることなく、より理想的な乗員保護性能を実現する燃焼特性を示すガス発生剤組成物として最適である。

## 請 求 の 範 囲

1. 燃料、酸化剤、及び添加剤を含有するガス発生剤組成物であって、その燃料が、少なくとも1種の高エネルギー性含窒素有機化合物と少なくとも1種の低エネルギー性含窒素有機化合物とからなり、且つ該低エネルギー性含窒素有機化合物の50%平均粒径が $40\mu\text{m}$ 以下である上記ガス発生剤組成物。

2. 前記低エネルギー性含窒素有機化合物の50%平均粒径が $20\mu\text{m}$ 以下である請求項1に記載のガス発生剤組成物。

3. 前記高エネルギー性含窒素有機化合物が、アミノテトラゾール、ニトログアニジン及びトリアミノグアニジンナイトレートよりなる群から選ばれる少なくとも1種である請求項1に記載のガス発生剤組成物。

4. 前記低エネルギー性含窒素有機化合物が硝酸グアニジンである請求項1に記載のガス発生剤組成物。

5. 前記高エネルギー性含窒素有機化合物が、アミノテトラゾール、ニトログアニジン、トリアミノグアニジンナイトレートよりなる群から選ばれる少なくとも1種であり、前記低エネルギー性含窒素有機化合物が硝酸グアニジンである請求項1に記載のガス発生剤組成物。

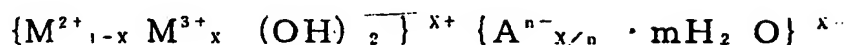
6. 前記酸化剤が、アルカリ金属若しくはアルカリ土類金属の硝酸塩、過素酸塩、塩素酸塩又は塩基性硝酸銅よりなる群から選ばれる少なくとも1種である請求項1に記載のガス発生剤組成物。

7. 前記酸化剤が、相安定化硝酸アンモニウム又は過塩素酸アンモニウムと、アルカリ金属若しくはアルカリ土類金属の硝酸塩、過塩素酸塩、塩素酸塩又は塩基性硝酸銅との混合物よりなる群から選ばれる少なくとも1種である請求項1に記載のガス発生剤組成物。

8. 前記添加剤が窒化珪素又は炭化珪素である請求項1に記載のガス

発生剤組成物。

9. 前記添加剤が、次の一般式で示されるヒドロタルサイト類である請求項1に記載のガス発生剤組成物。



ここで、

$M^{2+}$ :  $Mg^{2+}$ 、 $Mn^{2+}$ 、 $Fe^{2+}$ 、 $Co^{2+}$ 、 $Ni^{2+}$ 、 $Cu^{2+}$ 、 $Zn^{2+}$ 等の2価金属

$M^{3+}$ :  $Al^{3+}$ 、 $Fe^{3+}$ 、 $Cr^{3+}$ 、 $Co^{3+}$ 、 $In$ 等の3価金属

$A^n$ :  $OH^-$ 、 $F^-$ 、 $Cl^-$ 、 $NO_3^-$ 、 $CO_3^{2-}$ 、 $SO_4^{2-}$

$Fe(CN)_6^{3-}$ 、 $CH_3COO^-$ 、蔞酸イオン、サリチル酸イオン等のn価アニオン

$X$ :  $0 < X \leq 0.33$

10. 前記ヒドロタルサイト類が、化学式 $Mg_6Al_2(OH)_{16}CO_3 \cdot 4H_2O$ で表される合成ヒドロタルサイト又は化学式 $Mg_6Fe_2(OH)_{16}CO_3 \cdot 4H_2O$ で表されるピロウライトである請求項9に記載のガス発生剤組成物。

11. 前記添加剤が、カルボキシメチルセルロース、メチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロースよりなる群から選ばれる少なくとも1種のセルロース系バインダー又は天然高分子である請求項1に記載のガス発生剤組成物。

12. 前記添加剤が、ポリアクリル酸、ポリアクリル酸ソーダ、ポリアクリルアミド、およびこれらの2種又は3種の共重合化合物よりなる群から選ばれる少なくとも1種の請求項1に記載のガス発生剤組成物。

13. 前記添加剤が、シラン化合物である請求項1に記載のガス発生剤組成物。

14. 前記燃料が5-アミノテトラゾール及び硝酸グアニジン、前記酸化剤が硝酸ストロンチウム、前記添加剤が窒化珪素及び合成ヒドロタルサイトである請求項1に記載のガス発生剤組成物。

15. 前記燃料が5-アミノテトラゾール及び硝酸グアニジン、前記酸化剤が硝酸ストロンチウム及び硝酸カリウム、前記添加剤が窒化珪素及び合成ヒドロタルサイトである請求項1に記載のガス発生剤組成物。

16. 前記燃料が5-アミノテトラゾール及び硝酸グアニジン、前記酸化剤が硝酸ストロンチウム及び塩基性硝酸銅、前記添加剤が窒化珪素及び合成ヒドロタルサイトである請求項1に記載のガス発生剤組成物。

17. 前記燃料がニトログアニジン及び硝酸グアニジン、前記酸化剤が硝酸ストロンチウム、前記添加剤が窒化珪素である請求項1に記載のガス発生剤組成物。

18. 前記燃料がニトログアニジン及び硝酸グアニジン、前記酸化剤が硝酸ストロンチウム及び硝酸カリウム、前記添加剤が窒化珪素である請求項1に記載のガス発生剤組成物。

19. 前記燃料がニトログアニジン及び硝酸グアニジン、前記酸化剤が硝酸ストロンチウム及び塩基性硝酸銅である請求項1に記載のガス発生剤組成物。

20. 前記燃料が5-アミノテトラゾール及び硝酸グアニジン、前記酸化剤が硝酸ストロンチウム及び過塩素酸アンモニウム、前記添加剤がポリアクリルアミド及びシラン化合物である請求項1に記載のガス発生剤組成物。

21. 高エネルギー性含窒素有機化合物として5-アミノテトラゾール10～30重量%、低エネルギー性含窒素有機化合物として硝酸グアニジン5～30重量%、酸化剤として硝酸ストロンチウム30～70重量%、添加剤として窒化珪素0.5～10重量%及び合成ヒドロタルサイト2～10重量%を含有する請求項1に記載のガス発生剤組成物。

22. 高エネルギー性含窒素有機化合物としてニトログアニジン20～55重量%、低エネルギー性含窒素有機化合物として硝酸グアニジン5～30重量%、酸化剤として硝酸ストロンチウム30～60重量%、添加剤として窒化珪素0.5～10重量%及び合成ヒドロタルサイト2～10重量%を含有する請求項1に記載のガス発生剤組成物。

23. 高エネルギー性含窒素有機化合物としてニトログアニジン20～55重量%、低エネルギー性含窒素有機化合物として硝酸グアニジン5～30重量%、酸化剤として硝酸ストロンチウム30～60重量%、添加剤として窒化珪素0.5～10重量%及びセルロース系バインダー2～10重量%を含有する請求項1に記載のガス発生剤組成物。

24. 高エネルギー性含窒素有機化合物として5-アミノテトラゾール10～30重量%、低エネルギー性含窒素有機化合物として硝酸グアニジン5～30重量%、酸化剤として硝酸ストロンチウム10～50重量%、過塩素酸アンモニウム10～50重量%、添加剤としてポリアクリルアミド0.5～10重量%及びシラン化合物0.5～10重量%を含有する請求項1に記載のガス発生剤組成物。

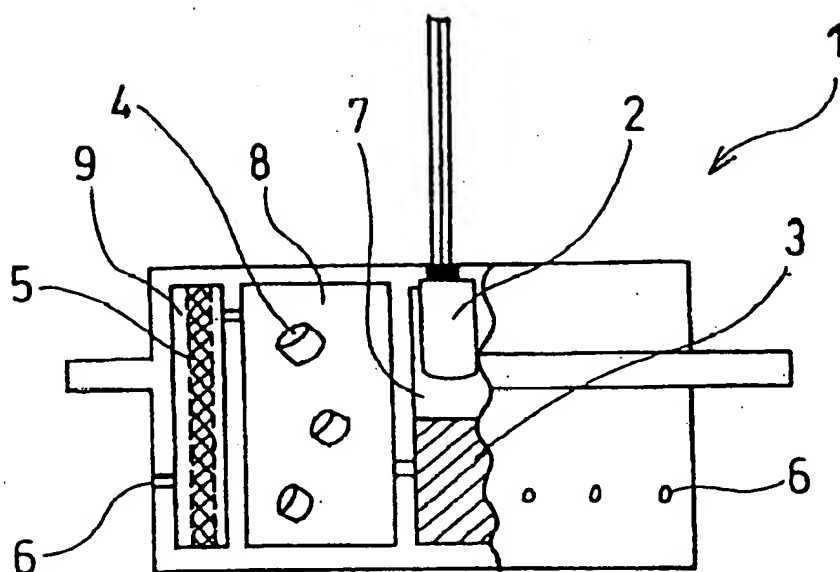
25. 更に10重量%以下の硝酸カリウムを含有する請求項21乃至24のいずれか1項に記載のガス発生剤組成物。

26. 更に30重量%以下の塩基性硝酸銅を含有する請求項21乃至24のいずれか1項に記載のガス発生剤組成物。

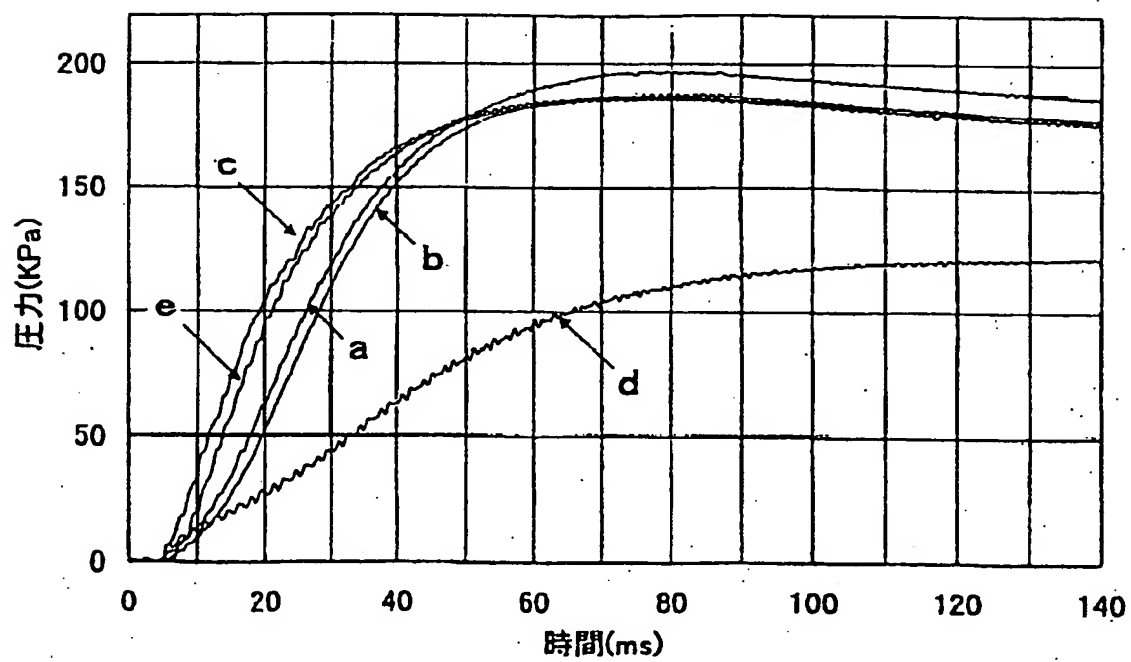
27. 前記セルロース系バインダーが、カルボキシメチルセルロース

、メチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース及びヒドロキシプロピルメチルセルロースよりなる群から選ばれる少なくとも1種である請求項23に記載のガス発生剤組成物。

第 1 図



第 2 図





## 第 3 図

表1 60リットルタンクテスト圧力 (kPa)

	10ms	20ms	30ms	40ms	50ms
実施例1	18.0	62.0	136.0	158.0	178.0
実施例2	17.0	60.0	136.5	163.0	182.0
実施例3	17.5	63.0	138.5	166.0	178.0
実施例4	15.0	69.0	141.0	169.5	180.0
実施例5	16.0	53.0	119.0	151.0	174.0
実施例6	16.5	57.5	124.0	160.0	175.0
比較例1	37.0	105.0	143.0	166.0	177.0
比較例2	12.0	27.0	44.0	63.0	82.0
比較例3	24.0	97.0	138.0	163.0	178.0

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/04070

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C06D5/00, C06B31/02, 31/28, 45/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C06D5/00, C06B31/02, 31/28, 45/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
CA (STN)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP, 591119, A2 (Bofors Explosives AB), 06 April, 1994 (06.04.94), Claims & SE, 470480, B & JP, 6-219882, A	1
A	US, 5386775, A (Automotive Systems Laboratory, Inc.), 07 February, 1995 (07.02.95), Claims & WO, 95/00462, A1 & JP, 8-500813, A & GB, 2284414, A	1
A	US, 5084118, A (Automotive Systems Laboratory, Inc.), 28 January, 1992 (28.01.92), Claims & EP, 482755, A1 & JP, 4-265289, A	1
A	EP, 661252, A2, A (MORTON INTERNATIONAL, INC), 05 July, 1995 (05.07.95), Claims & JP, 7-206569 & AU, 7595694, A	1

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
02 August, 2000 (02.08.00)Date of mailing of the international search report  
15 August, 2000 (15.08.00)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/04070

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO, 97/29927, A1 (AUTOMOTIVE SYSTEMS LABORATORY, INC.), 21 August, 1997 (21.08.97), Claims; example & EP, 880485, A2 & US, 5756929, A & JP, 2000-506111, A	1
P,A	WO, 00/15584, A1 (DAICEL CHEMICAL INDUSTRIES, LTD), 23 March, 2000 (23.03.00), Claims & JP, 2000-86376, A	1
P,A	WO, 00/14032, A1 (DAICEL CHEMICAL INDUSTRIES, LTD), 16 March, 2000 (16.03.00), Claims & JP, 2000-86375, A	1
A	JP, 11-157978, A (NIPPON KAYAKU CO., LTD.), 15 June, 1999 (15.06.99), Claims (Family: none)	9
A	WO, 97/05087, A1 (SENSOR TECHNOLOGY CO., LTD.), 13 February, 1997 (13.02.97), Claims & US, 6033500, A	9

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JPO0/04070

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. CL<sup>1</sup> C06D5/00、C06B31/02、31/28、45/02

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. CL<sup>1</sup> C06D5/00、C06B31/02、31/28、45/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)  
CA (STN)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	EP、591119、A2 (Bofors Explosives AB) 6. 4月. 1994 (06. 04. 94) 特許請求の範囲 &SE、470480、B &JP、6-219882、A	1
A	US、5386775、A (Automotive Systems Laboratory, Inc.) 7. 2月. 1995 (07. 02. 95) 特許請求の範囲 &WO、95/00462、A1	1

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02. 08. 00

国際調査報告の発送日

15.08.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

守安 智

4V

8519

電話番号 03-3581-1101 内線 3481

## C (続き) . 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	&JP、8-500813、A &GB、2284414、A	
A	US、5084118、A (Automotive Systems Laboratory, Inc.) 28. 1月. 1992 (28. 01. 92) 特許請求の範囲 &EP、482755、A1 &JP、4-265289、A	1
A	EP、661252、A2、A (MORTON INTERNATIONAL, INC) 05. 7月. 1995 (05. 07. 95) 特許請求の範囲 &JP、7-206569 &AU、7595694、A	1
A	WO、97/29927、A1 (AUTOMOTIVE SYSTEMS LABORATORY, INC.) 21. 8月. 1997 (21. 08. 97) 特許請求の範囲、実施例 &EP、880485、A2 &US、5756929、A &JP、2000-506111、A	1
P、A	WO、00/15584、A1 (DAICEL CHEMICAL INDUSTRIES, LTD) 23. 3月. 2000 (23. 03. 00) 特許請求の範囲 &JP、2000-86376、A	1
P、A	WO、00/14032、A1 (DAICEL CHEMICAL INDUSTRIES, LTD) 16. 3月. 2000 (16. 03. 00) 特許請求の範囲 &JP、2000-86375、A	1
A	JP、11-157978、A (日本化薬株式会社) 15. 6月. 1999 (15. 06. 99) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	9
A	WO、97/05087、A1 (SENSOR TECHNOLOGY CO., LTD.) 13. 2月. 1997 (13. 02. 97) 特許請求の範囲 &US、6033500、A	9

## 国際調査報告

(法 8 条、法施行規則第40、41条)  
[PCT 18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 F 9 1 0 4	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/J P 0 0 / 0 4 0 7 0	国際出願日 (日.月.年) 2 2 . 0 6 . 0 0	優先日 (日.月.年) 2 5 . 0 6 . 9 9
出願人 (氏名又は名称) 日本化薬株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条 (PCT 18条) の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

## 1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☒ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない (第 I 欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している (第 II 欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第 III 欄に示されているように、法施行規則第47条 (PCT規則38.2(b)) の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から 1 カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 \_\_\_\_\_ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☒ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. CL' C06D5/00、C06B31/02、31/28、45/02

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. CL' C06D5/00、C06B31/02、31/28、45/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CA (STN)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	EP、591119、A2 (Bofors Explosives AB) 6. 4月. 1994 (06. 04. 94) 特許請求の範囲 & SE、470480、B & JP、6-219882、A	1
A	US、5386775、A (Automotive Systems Laboratory, Inc.) 7. 2月. 1995 (07. 02. 95) 特許請求の範囲 & WO、95/00462、A1	1

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02.08.00

国際調査報告の発送日

15.08.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

守安 智

4V

8519

電話番号 03-3581-1101 内線 3481

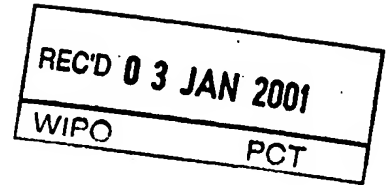
C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	&JP、8-500813、A &GB、2284414、A  US、5084118、A (Automotive Systems Laboratory, Inc.) 28. 1月. 1992 (28. 01. 92) 特許請求の範囲 &EP、482755、A1 &JP、4-265289、A	1
A	EP、661252、A2、A (MORTON INTERNATIONAL, INC) 05. 7月. 1995 (05. 07. 95) 特許請求の範囲 &JP、7-206569 &AU、7595694、A	1
A	WO、97/29927、A1 (AUTOMOTIVE SYSTEMS LABORATORY, INC.) 21. 8月. 1997 (21. 08. 97) 特許請求の範囲、実施例 &EP、880485、A2 &US、5756929、A &JP、2000-506111、A	1
P、A	WO、00/15584、A1 (DAICEL CHEMICAL INDUSTRIES, LTD) 23. 3月. 2000 (23. 03. 00) 特許請求の範囲 &JP、2000-86376、A	1
P、A	WO、00/14032、A1 (DAICEL CHEMICAL INDUSTRIES, LTD) 16. 3月. 2000 (16. 03. 00) 特許請求の範囲 &JP、2000-86375、A	1
A	JP、11-157978、A (日本化薬株式会社) 15. 6月. 1999 (15. 06. 99) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	9
A	WO、97/05087、A1 (SENSOR TECHNOLOGY CO., LTD.) 13. 2月. 1997 (13. 02. 97) 特許請求の範囲 &US、6033500、A	9



PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
[PCT36条及びPCT規則70]



出願人又は代理人 の書類記号 F9104	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO0/04070	国際出願日 (日.月.年) 22.06.00	優先日 (日.月.年) 25.06.99
国際特許分類(IPC) Int. CL <sup>7</sup> C06D5/00、C06B31/02、31/28、45/02		
出願人(氏名又は名称) 日本化薬株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で <u>3</u> ページからなる。  <input type="checkbox"/> この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。 (PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照) この附属書類は、全部で _____ ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。  I <input checked="" type="checkbox"/> 国際予備審査報告の基礎 II <input type="checkbox"/> 優先権 III <input type="checkbox"/> 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 IV <input type="checkbox"/> 発明の単一性の欠如 V <input checked="" type="checkbox"/> PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明 VI <input type="checkbox"/> ある種の引用文献 VII <input type="checkbox"/> 国際出願の不備 VIII <input type="checkbox"/> 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 23.10.00	国際予備審査報告を作成した日 18.12.00	
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員)  守安 智	4H 8519
電話番号 03-3581-1101 内線 3443		

## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
 PCT規則70.16, 70.17)

☒ 出願時の国際出願書類

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 出願時に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 出願時に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)

## V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)

請求の範囲

1-27

有

請求の範囲

無

進歩性(IS)

請求の範囲

1-27

有

請求の範囲

無

産業上の利用可能性(IA)

請求の範囲

1-27

有

請求の範囲

無

## 2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

文献1: EP、591119、A2 (Bofors Explosives AB)

6. 4月. 1994 (06. 04. 94)

文献2: US、5386775、A (Automotive Systems Laboratory, Inc.)

7. 2月. 1995 (07. 02. 95)

文献3: US、5084118、A (Automotive Systems Laboratory, Inc.)

28. 1月. 1992 (28. 01. 92)

文献4: EP、661252、A2、A (MORTON INTERNATIONAL, INC)

05. 7月. 1995 (05. 07. 95)

文献5: WO、97/29927、A1 (AUTOMOTIVE SYSTEMS LABORATORY, INC.)

21. 8月. 1997 (21. 08. 97)

文献6: JP、11-157978、A (日本化薬株式会社)

15. 6月. 1999 (15. 06. 99)

文献7: WO、97/05087、A1 (SENSOR TECHNOLOGY CO., LTD.)

13. 2月. 1997 (13. 02. 97)

請求の範囲: 1-27

請求の範囲第1項-第27項に記載された発明は、国際調査報告で引用された文献1~7に対し、新規性及び進歩性を有する。文献1~7には、ガス発生剤組成物において「高エネルギー性含窒素有機化合物」と50%平均粒径が40  $\mu$ m以下である「低エネルギー性含窒素有機化合物」とを組み合わせ用いることが記載されていないし、また右は当業者にとって自明な事項でもない。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/04070

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C06D5/00, C06B31/02, 31/28, 45/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C06D5/00, C06B31/02, 31/28, 45/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
CA (STN)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP, 591119, A2 (Bofors Explosives AB), 06 April, 1994 (06.04.94), Claims & SE, 470480, B & JP, 6-219882, A	1
A	US, 5386775, A (Automotive Systems Laboratory, Inc.), 07 February, 1995 (07.02.95), Claims & WO, 95/00462, A1 & JP, 8-500813, A & GB, 2284414, A	1
A	US, 5084118, A (Automotive Systems Laboratory, Inc.), 28 January, 1992 (28.01.92), Claims & EP, 482755, A1 & JP, 4-265289, A	1
A	EP, 661252, A2, A (MORTON INTERNATIONAL, INC), 05 July, 1995 (05.07.95), Claims & JP, 7-206569 & AU, 7595694, A	1

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
02 August, 2000 (02.08.00)

Date of mailing of the international search report  
15 August, 2000 (15.08.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/04070

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO, 97/29927, A1 (AUTOMOTIVE SYSTEMS LABORATORY, INC.), 21 August, 1997 (21.08.97), Claims; example & EP, 880485, A2 & US, 5756929, A & JP, 2000-506111, A	1
P,A	WO, 00/15584, A1 (DAICEL CHEMICAL INDUSTRIES, LTD), 23 March, 2000 (23.03.00), Claims & JP, 2000-86376, A	1
P,A	WO, 00/14032, A1 (DAICEL CHEMICAL INDUSTRIES, LTD), 16 March, 2000 (16.03.00), Claims & JP, 2000-86375, A	1
A	JP, 11-157978, A (NIPPON KAYAKU CO., LTD.), 15 June, 1999 (15.06.99), Claims (Family: none)	9
A	WO, 97/05087, A1 (SENSOR TECHNOLOGY CO., LTD.), 13 February, 1997 (13.02.97), Claims & US, 6033500, A	9

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

KAJI, Yoshiyuki  
Recruit Shin Osaka Building  
14-22, Nishinakajima 5-chome  
Yodogawa-ku  
Osaka-shi  
Osaka 532-0011  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 23 October 2000 (23.10.00)	
Applicant's or agent's file reference F9104	<b>IMPORTANT NOTIFICATION</b>
International application No. PCT/JP00/04070	International filing date (day/month/year) 22 June 2000 (22.06.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 25 June 1999 (25.06.99)
Applicant NIPPON KAYAKU KABUSHIKI-KAISHA et al	

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
25 June 1999 (25.06.99)	11/180178	JP	04 Sept 2000 (04.09.00)
21 Octo 1999 (21.10.99)	11/298989	JP	04 Sept 2000 (04.09.00)

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Magda BOUACHA

Telephone No. (41-22) 338.83.38

# PATENT COOPERATION TREATY

WO 01/00544  
PCT/JP00/04070

**PCT**

## NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

KAJI, Yoshiyuki  
Recruit Shin Osaka Building  
14-22, Nishinakajima 5-chome  
Yodogawa-ku  
Osaka-shi  
Osaka 532-0011  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 04 January 2001 (04.01.01)		
Applicant's or agent's file reference F9104		<b>IMPORTANT NOTICE</b>
International application No. PCT/JP00/04070	International filing date (day/month/year) 22 June 2000 (22.06.00)	
		Priority date (day/month/year) 25 June 1999 (25.06.99)
Applicant NIPPON KAYAKU KABUSHIKI-KAISHA et al		

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:  
**KR,US**

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:  
**CZ,EP**

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on  
04 January 2001 (04.01.01) under No. WO 01/00544

### REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

### REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer  J. Zahra
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38

# PATENT COOPERATION TREATY

## PCT

### INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

4T  
Translation

Applicant's or agent's file reference F9104	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/04070	International filing date (day/month/year) 22 June 2000 (22.06.00)	Priority date (day/month/year) 25 June 1999 (25.06.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C06D 5/00, C06B 31/02, 31/28, 45/02		
Applicant NIPPON KAYAKU KABUSHIKI-KAISHA		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>3</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of _____ sheets.</p>
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>

Date of submission of the demand 23 October 2000 (23.10.00)	Date of completion of this report 18 December 2000 (18.12.2000)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/04070

**I. Basis of the report****1. With regard to the elements of the international application:\***

- ☒ the international application as originally filed
- ☐ the description:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the claims:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

**2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.**  
These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

**3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:**

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

**4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:**

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

**5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\***

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/04070

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-27	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-27	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-27	YES
	Claims		NO

### 2. Citations and explanations

- Document 1: EP, 591119, A2 (Bofors Explosives AB)  
6 April 1994 (06.04.94)
- Document 2: US, 5386775, A (Automotive Systems Laboratory, Inc.)  
7 February 1995 (07.02.95)
- Document 3: US, 5084118, A (Automotive Systems Laboratory, Inc.)  
28 January 1992 (28.01.92)
- Document 4: EP, 661252, A2, A (Morton International, Inc.)  
5 July 1995 (05.07.95)
- Document 5: WO, 97/29927, A1 (Automotive System Laboratory, Inc.)  
21 August 1997 (21.08.97)
- Document 6: JP, 11-157978, A (Nippon Kayaku Co., Ltd.)  
15 June 1999 (15.06.99)
- Document 7: WO, 97/05087, A1 (Sensor Technology Co., Ltd.)  
13 February 1997 (13.02.97)

#### Claims 1 to 27

The inventions described in claims 1 to 27 involve both novelty and an inventive step with respect to documents 1 to 7 cited in the ISR. Documents 1 to 7 do not describe the idea of using a combination of a "high-energy nitrogen-containing organic compound" and a "low-energy nitrogen-containing organic compound" whose 50% average particle diameter is 40  $\mu\text{m}$  or less in a gas-generating agent composition. Nor would such an idea have been obvious to one skilled in the art.